

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-44228

(P2000-44228A)

(43) 公開日 平成12年2月15日 (2000.2.15)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード* (参考)
C 0 1 C 1/02		C 0 1 C 1/02	E 4 G 0 6 9
B 0 1 J 23/72		B 0 1 J 23/72	M
23/90		23/90	M
38/10		38/10	Z

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願平10-217168

(22) 出願日 平成10年7月31日 (1998.7.31)

(71) 出願人 000229601

日本バイオニクス株式会社

東京都港区西新橋1丁目1番3号

(72) 発明者 宮野 安定

神奈川県平塚市田村5181番地 日本バイオ
ニクス株式会社平塚工場内

(72) 発明者 大塚 健二

神奈川県平塚市田村5181番地 日本バイオ
ニクス株式会社平塚研究所内

(72) 発明者 脇 弘

神奈川県平塚市田村5181番地 日本バイオ
ニクス株式会社平塚研究所内

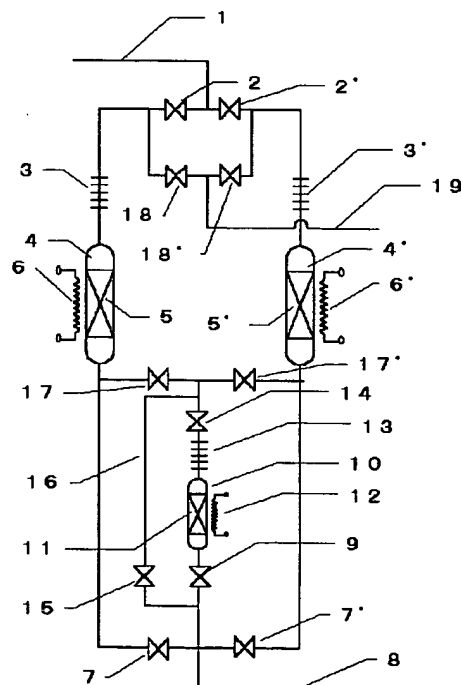
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 アンモニアの精製方法

(57) 【要約】

【課題】 アンモニアをニッケル触媒に接触させて酸素、一酸化炭素、二酸化炭素を除去するアンモニア精製方法において、ニッケル触媒の再生に水素の供給及び窒素の供給を必要としない精製方法を開発する。

【解決手段】 アンモニアをアンモニア分解触媒に接触させて水素を含むアンモニア分解ガスを得、このアンモニア分解ガスでニッケル触媒を還元する。また、ニッケル触媒に吸着している水素はアンモニアで追い出す。



(2) 開2000-44228 (P2000-442JL)

【特許請求の範囲】

【請求項1】 アンモニアをニッケル触媒と接触させ、該アンモニア中の酸素、一酸化炭素、二酸化炭素を除去するアンモニア精製方法において、アンモニアを加熱下でアンモニア分解触媒と接触させて水素を含有する分解ガスを生成させ、該分解ガスをニッケル触媒と接触させることによりニッケル触媒を再生することを特徴とするアンモニアの精製方法。

【請求項2】 アンモニア分解触媒が有効成分としてニッケル、鉄、ルテニウム、パラジウム、及び白金から選ばれる少なくとも1種を含むものである請求項1に記載のアンモニアの精製方法。

【請求項3】 アンモニア分解ガスをニッケル触媒に接触させる際の温度が150～300℃である請求項1に記載のアンモニアの精製方法。

【請求項4】 アンモニア分解触媒が、ニッケル触媒を充填したアンモニア精製筒内に設けられた請求項1に記載のアンモニアの精製方法。

【請求項5】 アンモニア分解触媒が、ニッケル触媒を充填したアンモニア精製筒外に設けられた請求項1に記載のアンモニアの精製方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明はアンモニアの精製方法に関し、更に詳細にはアンモニア精製方法におけるニッケル触媒の再生をアンモニア分解ガスによって行うアンモニアの精製方法に関する。アンモニアは、半導体製造プロセスにおいて窒化珪素膜生成のためにシランとともに使用され、また、トリエチルガリウムなどとともに窒化ガリウムなどの化合物半導体製造にも使用されている。近年、成膜技術の進歩とともにアンモニアガスが極めて高純度であることが強く要求されており、更にアンモニアが多量に使用されることから、高純度アンモニアを連続して供給可能なアンモニアの精製方法が要求されている。

【0002】

【従来の技術】アンモニアは液体状態でボンベあるいはタンクなどに貯蔵されるが、半導体製造に使用される際には、通常はガス状態で供給される。これらのアンモニア中には不純物として、酸素、一酸化炭素、二酸化炭素及び水などが含まれている。そして半導体製造に用いる際には、アンモニアを極めて高純度に精製する必要がある。

【0003】アンモニア中の酸素、一酸化炭素、二酸化炭素の除去に関しては、アンモニアをニッケル触媒に接触させることによって除去する方法が提案されている（特開平5-124813号公報、特開平6-107412号公報）。この方法によれば、アンモニアをニッケル触媒に接触させて、アンモニア中の酸素、一酸化炭素、二酸化炭素を効率よく除去することができ、酸素、

一酸化炭素、二酸化炭素を10ppb以下の濃度まで除去することが可能である。また、これらの不純物を捕捉し精製能力の低下したニッケル触媒は水素還元によって再生することができることから、優れた精製方法である。

【0004】また、アンモニア中の水分及び二酸化炭素を除去する方法としては、アンモニアを4Å、5Å程度の細孔径を有する合成ゼオライトなどに接触させて吸着除去することができる。水分あるいは二酸化炭素を吸着した合成ゼオライトは加熱下に乾燥ガスを流通させることによって再生することができる。このような技術を基に、アンモニアをニッケル触媒に接触させ、次いで合成ゼオライトに接触させることによってアンモニアを高純度に精製する装置が用いられている。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】しかし、ニッケル触媒を用いるアンモニアの精製方法には次のような問題点があった。すなわち、アンモニア中の酸素、一酸化炭素、二酸化炭素を捕捉したニッケル触媒を再生するには、ニッケル触媒を還元するためにアンモニア精製装置に付帯して水素の供給配管が必要である。また、還元したニッケル触媒には多量の水素が吸着していることから、水素による還元終了後はニッケル触媒から水素を除去するために、加熱した状態で窒素などの不活性ガスを長時間にわたり流通させる必要がある。更に、アンモニアの精製に先立って、ニッケル触媒にアンモニアを通気し、ニッケル触媒層中の窒素ガスを追い出すことが必要である。

【0006】このようにニッケル触媒を水素により還元した後、窒素などの不活性ガスで水素の追い出しが行われるが、これらの処理に使用する水素及び窒素は高純度に精製されたガスでなければならない。精製された水素及び窒素を使用するためには、それぞれの精製装置が必要となり必然的にコスト高となる不都合がある。更に、アンモニアの精製に先立ち、ニッケル触媒を再生する際に使用した窒素ガスの追い出しに多量の精製アンモニアを置換用として使用する必要があり、操作が複雑となるほか、コストがかかるという不都合があった。このほか、脱湿剤として合成ゼオライトなどを組み合わせたアンモニア精製装置の場合には、窒素をアンモニアに置換する際に、合成ゼオライトのアンモニア吸着に基づく大きな吸着熱を生じる結果、冷却に長時間を要する不都合があった。これらのことから、装置構成が簡単であり、再生操作の容易なアンモニア精製方法の開発が望まれていた。すなわち、本発明の課題は、水素や窒素などを使用する必要がなく、簡便な操作で精製することができ、しかもコスト的に優れたアンモニア精製方法を開発することである。

【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、これら従来技術の問題点を解決すべく鋭意研究を重ねた結果、ア

(3) 開2000-44228 (P2000-442JL)

ンモニアをアンモニア分解触媒に接触させて水素を含有するアンモニア分解ガスを得、この分解ガスを用いることによって極めて効率よくニッケル触媒を還元し得ること、及びこの方法によって従来ニッケル触媒の再生のために必要であった、高純度水素供給ライン、高純度窒素供給ラインが不要になることを見出し、本発明に到達した。すなわち本発明は、アンモニアをニッケル触媒と接触させ、該アンモニア中の酸素、一酸化炭素、二酸化炭素を除去するアンモニア精製方法において、アンモニアを加熱下でアンモニア分解触媒と接触させて水素を含有する分解ガスを生成させ、該分解ガスをニッケル触媒と接触させることによりニッケル触媒を再生することの特徴とするアンモニアの精製方法である。本発明において、アンモニアとは特にことわらない限りガス状のアンモニアを意味するものである。また、アンモニア分解触媒とは、アンモニアを水素と窒素に分解する触媒を意味するものである。

【0008】

【発明の実施の形態】本発明は、アンモニアの精製方法に適用される。本発明において、ニッケル触媒とは有効成分としてニッケルを含み、アンモニア中の酸素、一酸化炭素、二酸化炭素を捕捉除去するものであり、酸素、一酸化炭素、二酸化炭素の除去能力が大であるとともに極低濃度まで除去するものである。ニッケル触媒は金属ニッケル又はニッケルの酸化物など還元されやすいニッケル化合物を含むものである。またニッケル以外の金属成分としてクロム、コバルト、鉄などの金属を少量含むものでもよい。これらのニッケルは単独で用いてもよく、触媒担体などに担持させた形態で用いてもよいが、ニッケルの表面とガスの接触効率を上げる目的などから通常は触媒担体などに担持させた形態で用いられる。

【0009】ニッケル触媒は、珪藻土、アルミナ、シリカアルミナなどの担体に硝酸ニッケル、酢酸ニッケルなどのニッケル塩の水溶液とアルカリ性物質を用いて含浸、乾燥、焼成することなどにより調製することができる。また、ニッケルの無機塩、有機塩などを焼成した後、押し出し成形、打錠成形などによって調製することもできる。このほか、ニッケル触媒として市販品があることから、それらを用いることもできる。

【0010】市販のニッケル触媒としては、例えば、水素化触媒であるN-112 (Ni-珪藻土)、ガス変成触媒であるN-174 (NiO)、ガス化触媒であるN-185 (NiO) [以上日揮化学(株)製]、水蒸気変成触媒であるC11-2-03 (NiO-セメント)、水素化触媒であるC46-7 (Ni-珪藻土) [以上東洋CCI(株)製] などがある。要は、還元ニッケル、酸化ニッケルなどが微細に分散されて、その表面積が大きくガスとの接触効率の高い形態であればよく、触媒の形態に特に限定されるものではない。

【0011】本発明において、ニッケル触媒の比表面積

として通常は、BET法で $10 \sim 300 \text{ m}^2/\text{g}$ の範囲のもの、好ましくは $30 \sim 250 \text{ m}^2/\text{g}$ 範囲のものである。また、ニッケル含有量は金属ニッケル換算で通常は $5 \sim 95$ 重量%、好ましくは $20 \sim 90$ 重量%である。

【0012】本発明において、アンモニアのニッケル触媒による精製は、上記ニッケル触媒を筒状の精製筒等に充填し還元した後、アンモニアを精製筒に通気することによって行われ、アンモニア中の酸素、一酸化炭素、二酸化炭素が捕捉除去される。本発明が適用されるアンモニア中の酸素、一酸化炭素、二酸化炭素の濃度は通常それぞれ 10 ppm 以下である。

【0013】本発明において、ニッケル触媒の充填長は実用上通常は $50 \sim 1500 \text{ mm}$ とされる。 50 mm よりも短いと酸素、一酸化炭素、二酸化炭素の除去率が低下する虞があり、 1500 mm よりも長くなると圧力損失が大きくなり過ぎる虞がある。精製時のアンモニアの空筒線速度(LV)はアンモニア中の酸素、一酸化炭素、二酸化炭素の濃度によっても異なり一概に特定はできないが、通常は 100 cm/sec 以下、好ましくは 30 cm/sec 以下である。

【0014】本発明において、アンモニアとニッケル触媒の接触温度は 200°C 以下、好ましくは 100°C 以下であり、通常は常温でよく、特に加熱や冷却を必要としない。ニッケル触媒とアンモニアの接触圧力に特に限定はなく、常圧、加圧、減圧いずれも実施可能である。また、アンモニア中に微量の水分が存在しても酸素、一酸化炭素、二酸化炭素の除去には特に悪影響を及ぼすことはない。本発明においてニッケル触媒による酸素、一酸化炭素、二酸化炭素の除去工程に必要に応じて合成ゼオライトなどの脱湿剤による水分除去工程を組み合わせることができる。これによって、アンモニアを極めて高純度に精製することができる。

【0015】本発明における、アンモニア分解触媒としては、通常は有効成分としてニッケル、鉄、パラジウム、白金又はルテニウムを含む触媒などが用いられる。また、これらの有効成分を単独で含む触媒のほか、一種以上を含む触媒も用いることができる。ニッケル触媒としてはアルミナ、シリカアルミナなどの担体にニッケルとして $3 \sim 50$ 重量%程度担持されたものが用いられる。鉄触媒としてはアルミナなどの担体に二三酸化鉄として $1 \sim 20$ 重量%担持させたものが用いられる。

【0016】またパラジウム触媒としては、アルミナなどの担体にパラジウムとして $0.1 \sim 5$ 重量%程度担持させたものが用いられる。ルテニウム触媒は比較的低い温度で高い分解活性を有することから、アンモニア分解触媒としてすぐれたものである。ルテニウム触媒はルテニウムをアルミナ、シリカアルミナ、珪藻土などの担体に $0.05 \sim 8$ 重量%程度担持させたものが用いられるが、これらの内でも成形強度の大きいアルミナに担持さ

(4) 開2000-44228 (P2000-442JL)

せたものが好ましい。中でも耐熱性に優れ安定した分解活性を有する点で α アルミナに担持させたものが特に好ましい。

【0017】本発明において、アンモニア分解触媒による接触分解は、通常はアンモニア分解触媒を筒状などの分解筒に充填し、加熱下に接触させることにより行われる。アンモニア分解触媒の充填長として通常は50～1500mm程度とされる。充填長が50mmより短くなるとアンモニア分解率が低下する虞があり、1500mmよりも長くなると圧力損失が大きくなりすぎる虞がある。本発明においてアンモニア分解の条件として、アンモニアの分解率が100%である必要はなく、アンモニア分解ガス中の水素濃度がニッケル触媒の還元可能な程度に達していればよく、特に限定されるものではない。

【0018】本発明において、アンモニアとアンモニア分解触媒との接触温度は分解触媒の種類、所望の分解率、アンモニア供給量などによって異なり一概には特定できない。例えばパラジウム触媒、鉄触媒などにおいて通常は500～900℃である。また、ルテニウム触媒の場合には300～500℃のような比較的低い温度で行うこともできる。また、アンモニア分解における空間速度(SV)は分解触媒の充填長、接触温度、触媒の種類などによって異なるが、通常は、0℃、常圧換算で50～5000h⁻¹、好ましくは300～1000h⁻¹程度である。アンモニア分解時における圧力に特に限定はなく、加圧、常圧、減圧などいずれの条件でも実施することができるが、アンモニア精製装置の構成上通常は0.1～0.7MPa程度の範囲で行われる。

【0019】本発明においてニッケル触媒の還元は、ニッケル触媒が充填された精製筒を加熱のもとにアンモニア分解ガスを通気することによって行われる。ニッケル触媒の還元時における温度は通常150～300℃である。150℃より低いとニッケル触媒の還元が不十分となる虞がある。また、300℃よりも高い場合は、ニッケルのシントリングを生じる虞がある。また、ニッケル触媒の還元時におけるアンモニア分解ガス中の水素濃度に特に限定はないが通常は0.1～75%である。水素濃度が0.1%よりも低くなるとニッケル触媒の還元が不十分となる虞がある。

【0020】なお、ニッケル触媒還元の際におけるアンモニア分解ガスとニッケル触媒との接触時間に特に限定はないが通常は0.5秒以上であり、好ましくは2秒以上で空筒線速度(LV)は1～5cm/secの範囲である。接触時間が0.5秒よりも短いとニッケル触媒の還元が不十分となる虞がある。

【0021】本発明のアンモニア精製方法の例を図1により具体的に説明するが本発明はこれらにより限定されるものではない。図1はアンモニア精製筒を並列に2基、アンモニア分解筒を1基設けた構成の例で示した。アンモニア精製筒4、4'にはニッケル触媒5、5'が

充填されている。またアンモニア分解筒10にはアンモニア分解触媒11が充填されている。原料アンモニアはアンモニア供給ライン1からバルブ2を経て常温付近の温度に保持されたアンモニア精製筒4に導入され、アンモニア中の酸素、一酸化炭素、二酸化炭素がニッケル触媒5に捕捉除去される。

【0022】次いでアンモニア精製筒出口、バルブ7を経て精製アンモニアライン8から高純度アンモニアが得られる。この間、精製アンモニアの一部がバルブ9を経て加熱された分解筒10に供給され、水素を含有するアンモニア分解ガスとなり、冷却器13、バルブ17'を経て加熱されたアンモニア精製筒4'に導入される。ニッケル触媒5'を還元した後のアンモニア分解ガスはアンモニア精製筒上部、冷却器3'、バルブ18'、パージライン19を経て大気中あるいは排ガス処理設備に導かれる。ニッケル触媒5'の還元が終了した時点で、アンモニア分解筒10の加熱を停止し、バルブ9、14を閉め、バルブ15、バイパスライン16を経て精製アンモニアをアンモニア精製筒4'に供給し、ニッケル触媒5'に吸着されている水素を追い出す。その後、アンモニア精製筒4'の加熱を停止し、常温付近の温度となるまで少量の精製アンモニアを流通させる。しかる後、バルブ15、バルブ17'、18'を閉にし、ニッケル触媒の再生操作終了とし、精製筒の切換えに備える。

【0023】このアンモニア精製及びニッケル触媒還元の操作を交互に行うことにより、連続して高純度アンモニアを供給することができる。図1はアンモニア分解筒をアンモニア精製筒の外部に1基設けた例で示したが、図2のようにアンモニア精製筒の下部に直列にアンモニア分解筒をそれぞれ1基ずつ設けることもできる。そのほかアンモニア精製筒内の下部に分解触媒層として設けることもできる。アンモニア精製筒内に分解触媒層を設ける場合にはアンモニア精製用のニッケル触媒が300℃以下に保持されるように考慮する必要がある。

【0024】また、アンモニア精製筒の下部に直列に合成ゼオライトなどの脱湿剤を充填した精製筒を設けること、あるいはアンモニア精製筒内のニッケル触媒の下部又は上部、好ましくは下部に脱湿剤層を設けることもできる。これによりアンモニア中の水分を除去し、アンモニアを高純度に精製することができる。アンモニアの脱湿剤として、例えば4Å、5Å程度の細孔径を有する合成ゼオライト(ユニオン昭和(株)製、又はリンデ製、モレキュラーシーブ4A、5A)などが用いられる。これらの合成ゼオライトは、アンモニア中の水分を吸着した後、250～350℃の加熱下に精製アンモニア又はアンモニア分解ガスを通気することによって再生することができる。

【0025】なお本発明において、アンモニアの精製をニッケル触媒と合成ゼオライトなどの脱湿剤と組み合わせた方法とした場合には、アンモニア分解ガスでニッケ

(5) 開2000-44228 (P2000-442JL)

ル触媒の還元と同時に脱湿剤の再生を行うことができる。この方法においては、脱湿剤は再生操作中、常にアンモニア含有ガスと接触してアンモニアを吸着した状態になっている。したがって脱湿剤の冷却過程におけるアンモニア吸着量の増加が少なく、それに伴って吸着熱の発生が減少する結果、従来の再生方法に比較して脱湿剤の再生操作が容易になる。

【0026】本発明は以上の如く、アンモニア精製、及びニッケル触媒の還元アンモニア以外のガスを全く使用しない精製方法の例で示した。しかし、ニッケル触媒還元後の水素の追い出し、ニッケル触媒還元時の水素濃度調整の容易性、及び排気ガスの安全性保持などを考慮して、高純度窒素の供給ラインを設けることもできる。本発明は、このように窒素供給ラインを組み合わせたことを排除するものではない。

【0027】

【実施例】本発明を実施例により具体的に説明するが、本発明はこれらにより限定されるものではない。

実施例1

図1に示すものと同様のアンモニア精製装置を製作した。アンモニア精製筒4、4'はSUS316L製、内径83.1mm、長さ1260mmであり、外部電気ヒーター6、6'により温度制御し得るように構成されている。またアンモニア精製筒内部には日揮化学(株)製ニッケル触媒(N-112)を3.28L(充填長605mm)充填した。

【0028】また、アンモニア分解筒10はSUS31

表1

精製開始後の分析 時間(h)	酸素 (ppm)	一酸化炭素 (ppm)	二酸化炭素 (ppm)
40	n. d	n. d	n. d
80	n. d	n. d	n. d

n. d=検出せず

【0031】(ニッケル触媒の還元)上記アンモニアの精製開始1時間後からバルブ9を経て400℃に加熱されたアンモニア分解筒10に精製アンモニアを1L/minの流量で流し、アンモニア分解ガスとした。このアンモニア分解ガスを250℃に加熱されたアンモニア精製筒4'に2時間通気し、ニッケル触媒の還元を行った。その後、アンモニア分解筒10の加熱を停止し、アンモニア精製筒4'にバイパスライン16から精製アンモニアを2時間通気したのち、アンモニア精製筒4'の加熱を停止し、バルブ15、17'を開、バルブ18'を閉の状態、アンモニア精製筒4'の温度が50℃以下となるまで放置した。このようにして、アンモニア精

6L製、内径83.1mm、長さ250mmであり、外部電気ヒーター12により温度制御し得るように構成されている。またアンモニア分解筒内部10にはNEケムキャット社製ルテニウム触媒(0.5%Ru/Al₂O₃)を0.54L(充填長100mm)充填した。以下の実験に先立ち、次のようにしてアンモニア精製筒4の調製を行った。すなわち、250℃の加熱、常圧のもとにアンモニア精製筒4に水素を10L/minの流量で2時間流通させニッケル触媒を還元した。つぎに水素を精製窒素に変えて2時間流通させニッケル触媒中に含まれる水素を追い出した。その後、アンモニア精製筒の加熱を停止し、窒素を精製アンモニアに変えて、少量の精製アンモニアを流しながら冷却した。

【0029】(アンモニアの精製)上記アンモニア精製装置にアンモニア供給ラインから、酸素25ppm、一酸化炭素1ppm、二酸化炭素0.5ppmを含む原料アンモニアを0.4MPaの加圧下、5Nm³/hの流量で200時間流通させた。精製開始40時間、及び80時間後における精製筒出口アンモニア中の不純物を分析した。酸素はDELTA F社製酸素分析計(検出下限0.1ppm)で、一酸化炭素、二酸化炭素は島津製作所(株)製、ガスクロマトグラフGC-12A(メタン変換器、FID検出器付、検出下限0.01ppm)でそれぞれ分析した。結果を表1に示した。

【0030】

【表1】

製筒4'のニッケル触媒5'を還元し、精製筒の切換え使用に備えた。

【0032】このように、アンモニアの精製とニッケル触媒の還元をアンモニア精製筒4とアンモニア精製筒4'とで200時間ごとに交互に行い、その間の酸素、一酸化炭素、二酸化炭素の破過時間を測定した。なお、破過濃度は検出下限値とした。結果を表2に示した。この結果から、アンモニア分解ガスによりニッケル触媒の還元が繰り返し良好に行われていることが認められた。

【0033】

【表2】

表2

繰り返し回数	破過するまでの時間(h)		
	酸素	一酸化炭素	二酸化炭素
初回	192	162	120
2	191	161	119

(6) 開2000-44228 (P2000-442JL)

3	190	160	118
4	195	160	118
5	190	160	118

【0034】実施例2

図2に示すように、アンモニア精製筒の下部にそれぞれ直列にNEケムキャット社製Ru触媒(0.5%Ru/ Al_2O_3)が0.54L(100mm)充填されたアンモニア分解筒を設け、それぞれRu触媒でアンモニアを分解してアンモニア分解ガスを得、この分解ガスでニッケル触媒の還元処理した以外は、実施例1と同様に繰

り返し精製を行い、酸素、一酸化炭素、二酸化炭素の破過時間を測定した。結果を表3に示すが、アンモニアの精製及びニッケル触媒の還元は問題なく行われていることが確認された。

【0035】

【表3】

表 3

繰り返し回数	破過するまでの時間(h)		
	酸素	一酸化炭素	二酸化炭素
初回	192	163	122
2	194	162	120
3	192	161	123
4	194	163	122
5	193	161	120

【0036】実施例3

実施例2で用いたアンモニア精製装置を96時間ごとに精製筒の切り替える方式で自動運転させた。原料アンモニアは実施例1、2と同様に、酸素25ppm、一酸化炭素1ppm、二酸化炭素0.5ppmを含むものであり、0.4MPaの加圧下、 $5Nm^3/h$ の流量で供給した。その結果、アンモニア精製開始960時間後における精製アンモニア中の酸素、一酸化炭素、二酸化炭素を分析したが、いずれも検出されなかった。また、精製開始960時間後までに得られた精製アンモニアは $4786Nm^3$ であり、ニッケル触媒の還元のために使用されたアンモニアは $13.5Nm^3$ であった。

【0037】比較例1

図2のアンモニア精製装置からアンモニア分解筒10、10'を取り外し、ニッケル触媒の還元用の精製水素供給配管と精製窒素供給配管とを接続し、ニッケル触媒を従来のアンモニア精製装置と同様に水素で行うこととし、96時間ごとに精製筒を切り替える方式の自動運転でアンモニア精製を行った。原料アンモニアの供給は実施例3と同様に行った。その結果、精製開始960時間後までに得られた精製アンモニアは $4780Nm^3$ であったが、ニッケル触媒の還元のために使用された水素は $0.24Nm^3$ 、窒素は $25Nm^3$ であり、置換に用いたアンモニアは $20Nm^3$ であった。

【0038】

【発明の効果】本発明により、アンモニア精製におけるニッケル触媒の再生に水素供給ライン及び窒素供給ラインが不要となった。このために精製操作が単純化されとともに、精製アンモニアを高純度に維持することが容易になった。更に、精製装置が単純化され、安価に製作することができるようになった。

【図面の簡単な説明】

【図1】アンモニア分解筒を1筒設けた精製装置のフローシートの例である。

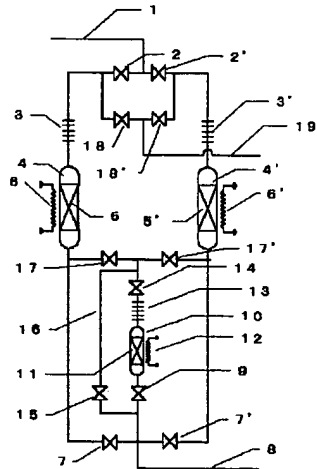
【図2】アンモニア分解筒をアンモニア精製筒の下部に直列に設けた精製装置のフローシートの例である。

【符号の説明】

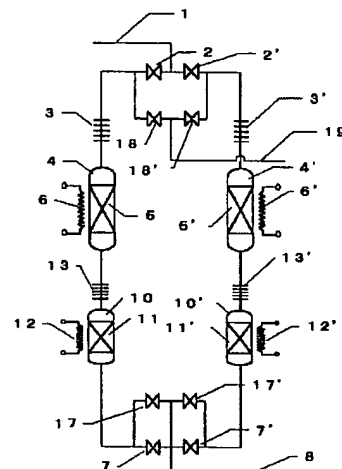
- 1 アンモニア供給ライン
- 2、2'、7、7'、9、14、15、17、17'、18、18' バルブ
- 3、3'、13、13' 冷却器
- 4、4' アンモニア精製筒
- 5、5' ニッケル触媒
- 6、6'、12、12'、21、21' ヒーター
- 8 精製アンモニアライン
- 10、10' アンモニア分解筒
- 11、11' アンモニア分解触媒
- 16 バイパスライン
- 19 パージライン

(7) 開2000-44228 (P2000-442JL)

【図1】



【図2】



フロントページの続き

Fターム(参考) 4G069 AA03 AA10 BA01B BA09B
BC66A BC67A BC68A BC68B
BC70A BC70B BC72A BC75A
CB82 DA08 EA02Y FC04
FC07 GA05 GA19